

ГОДИШНИК НА МИННО-ГЕОЛОЖКИЯ УНИВЕРСИТЕТ "СВ. ИВАН РИЛСКИ", Том 59, Св. II, Добив и преработка на минерални суровини, 2016
ANNUAL OF THE UNIVERSITY OF MINING AND GEOLOGY "ST. IVAN RILSKI", Vol. 59, Part II, Mining and Mineral processing, 2016

ВЛИЯНИЕ НА РЕЦИКЛИРАНЕТО НА ПЛУТОНИЯ ВЪРХУ МАТЕРИАЛНИЯ БАЛАНС НА ЯДРЕНИЯ ГОРИВЕН ЦИКЪЛ

Ивайло Найденов

Технически университет – София, кат. „Топлоенергетика и ядрена енергетика“, 1000 София, ivaylo.naydenov@gmail.com

РЕЗЮМЕ. Понастоящем най-разпространеният тип ядрено гориво за енергийни реактори е уранов диоксид с обогатяване по изотопа уран-235 до 5%. След производството на определено количество топлинна енергия в резултат на ядрената реакция на делене, концентрацията на уран-235 намалява като достига стойности, при които поддържането на верижната ядрена реакция на делене става невъзможно. В този момент отработеното вече гориво се извежда от ядрения реактор и се заменя със свежо. Поради факта, че за да се изразходват всички ядра на делящите се изотопи, реакторът трябва да работи безкрайно дълго, в отработеното гориво се съдържат неоползотворени делящи се изотопи – около 1% уран-235 и 1% плутоний. Имайки предвид, че годишно от един енергиен реактор с вода под налягане се извеждат между 20 и 30 тона отработено гориво, както и това, че в света работят над 430 такива реактора, остатъчните уран и плутоний могат да се разглеждат като допълнителен енергиен ресурс. Един от начините за оползотворяване (рециклиране) на тези изотопи е преработката на отработеното гориво, извличането на делящия се материал и производството на смесено уран-плутониево оксидно гориво (МОХ), което може да се използва в съвременните енергийни реактори. В настоящия доклад е разгледано влиянието на използването на смесено оксидно гориво върху необходимите количества уранов концентрат, обогатен уран, разделителна работа, необходимата мощност на заводите за изотопно разделяне, както и върху количествата обеднен уран, които се получават при обогатяването и в общия случай се складира. Анализирани са реализираните спестявания на уранов концентрат и разделителна работа, както и влиянието на рециклирането върху степента на оползотворяване на първичния енергиен ресурс.

Ключови думи: ядрен горивен цикъл, плутоний, смесено уран-плутониево гориво, МОХ, материален баланс

IMPACT OF PLUTONIUM RECYCLING ON NUCLEAR FUEL CYCLE'S MATERIAL BALANCE

Ivaylo Naydenov

Technical University of Sofia, Department of Thermal and Nuclear Power Engineering, 1000 Sofia, ivaylo.naydenov@gmail.com

ABSTRACT. Currently, the most widely used nuclear fuel type for power reactors is enriched uranium dioxide. The uranium-235 enrichment level is up to 5%. A certain amount of thermal energy is produced as a result of the nuclear fission reaction which leads to decreasing of the uranium-235 concentration to such levels that sustaining nuclear fission chain reaction becomes impossible. At this moment the spent fuel is discharged from the reactor and is replaced by fresh nuclear fuel. In order to use up all fissile isotopes in the fuel, the reactor must operate infinitely; therefore, some unused fissile material is left in the spent fuel – some 1% uranium-235 and about as much plutonium. Considering that the spent fuel discharged from a single light water reactor amounts at 20 to 30 tonnes, and there are more than 430 such reactors operating worldwide, those residual uranium-235 and plutonium could be considered as an additional energy resource. One way to recycle these isotopes is by spent fuel reprocessing, fissile material extraction and mixed uranium-plutonium oxide (MOX) fuel manufacturing. This fuel type could be used in the contemporary nuclear power reactors. This article considers the impact MOX fuel usage has on the needed amounts of uranium concentrate, enriched uranium, separative work, uranium enrichment plants' capacity, and the quantities of depleted uranium produced during uranium enrichment that are usually warehoused. The savings of uranium concentrate and separative work are analysed, as well as the effect the recycling has on the primary energy resource utilization.

Keywords: nuclear fuel cycle, plutonium, mixed uranium-plutonium fuel, MOX, material balance

Ядрен горивен цикъл и материален баланс

Последователността от производствени и технологични процеси, свързани с производството на ядрено гориво, получаването на енергия в ядрените реактори, както и с управлението и съхранението на отработеното ядрено гориво (ОЯГ) и радиоактивните отпадъци (РАО), е известна под наименованието ядрен горивен цикъл (Велев и Филипов, 2008). В зависимост от начина на управление на отработеното гориво, горивните цикли биват отворени и затворени. Затворени са тези разовидности, при които отработеното гориво се преработва и част или всички от извлечените делящи се материали се рециклират (OECD NEA, 2006). Най-често рециклираният материал е плутоният, като той се оползотворява под формата на смесено уран-плутониево оксидно гориво (МОХ), което

може да се използва както в реактори на топлинна, така и в реактори на бързи неутрони (Филипов и Найденов, 2015).

За да бъде постигната определена дълбочина на изгаряне B (произведена топлинна енергия от тон тежък метал) е необходим уран с работно обогатяване в количество G_x :

$$G_x = \frac{Q}{B} = \frac{N T_k \cdot \varphi}{B \cdot \eta} = \frac{W}{B \cdot \eta} \quad (1)$$

В (1) с Q е обозначена брутната топлинна енергия, произведена от съответната маса уран с работно обогатяване за дадения календарен период в MWh , B е постигнатата дълбочина на изгаряне в MWd/tM , N –

брутна електрическа мощност на енергийния блок, MW , T_k – календарно време, η – брутен термодинамичен к.п.д. на енергийния блок, ϕ – коефициент на използване на инсталираната мощност на енергийния блок и W – бруто електропроизводство за календарния период, MWh .

Масата на природния уран, необходим за производство на уран с работно обогатяване G_x , е:

$$G_0 = \frac{x-y}{c_0-y} G_x \quad (2)$$

В уравнение (2) с x е обозначено работното обогатяване, c_0 е природната концентрация на уран-235 в изотопната смес на урана (0.711%), а y е концентрацията на уран-235 в обеднения материален поток. Масата на урановия концентрат $G_{U_{235}}$, необходим за производството на природен уран с маса G_0 е:

$$G_{U_{235}} = \frac{M_U}{M_{U_{235}}} G_0, \quad (3)$$

където M_U е моларната маса на металния природен уран, а $M_{U_{235}}$ е моларната маса на урановия концентрат. Реакторите на топлинни неутрони с топлоносител и забавител лека вода, както и реакторите на бързи неутрони изискват концентрацията на уран-235 в горивото да бъде по-висока от природната. Такъв уран се нарича обогатен. При процеса на изотопно обогатяване на урана, наред с обогатената фракция, се произвежда и обеднен уранов поток, в който концентрацията на уран-235 е по-ниска от природната. Масовият поток на обеднения уран G_y може да се изчисли съгласно уравнение (4):

$$G_y = G_0 - G_x \quad (4)$$

Материалните потоци, изчислени съгласно равенства (1) – (4), не включват в себе си неизбежните загуби на уран, съпътстващи технологичните процеси в предния край на горивния цикъл.

За да се получи повишаване на концентрацията на ^{235}U е необходимо да бъде извършена определена работа, която се нарича разделителна работа. Тази работа може да бъде определена като се оцени величината, която характеризира изотопното разделяне при произволно зададен изотопен състав на трите материални потока – на хранящия продукт (G_c), на обогатения уран (G_x) и на обеднения уран (G_y). За оценяването на тази величина се използва функцията $V(n)$, която се нарича разделителен потенциал. Разделителната работа представлява изменението на тази функция. Разделителният потенциал за произволна концентрация на уран-235 n може да се определи с достатъчна точност съгласно зависимост (5), а разделителната работа, необходима за обогатяване на природен уран до произволна концентрация x се определя съгласно (6) (Велев и Филипов 2008, Синев, 1987).

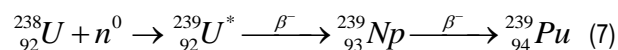
$$V(n) = (2n-1) \ln \frac{n}{1-n} \quad (5)$$

$$\Delta U = G_x V(x) + G_y V(y) - G_0 V(c_0) \quad (6)$$

Изменение на състава на ядреното гориво

В резултат на протичащата ядрена реакция на делене на ядрата на уран-235, концентрацията му в ядреното гориво намалява за сметка на получената енергия и образуваните нови по-леки нуклиди, наречени продукти на делене. Концентрацията на уран-235 намалява и в следствие на поглъщане на неутрон без да настъпи делене, което води до образуването и натрупването на уран-236.

Освен изгарянето на уран-235, в ядреното гориво протичат и други процеси, най-същественият от които е неговото възпроизводство. При този процес, в резултат на поглъщане на неутрон от определе недеящ се изотоп (напр. уран-238), се получава нов деящ се материал. По този начин в урановите горива се получава деящият се изотоп плутоний-239, като механизмът на получаването му е илюстриран с ядрената реакция (7) (Синев, 1987).



В резултат на тези процеси, приблизителният състав на отработено ураново гориво от леководен реактор с начално обогатяване от 5% след достигане на дълбочина на изгаряне от 60 000 MWd/tM е: уран-235 – 0.70%, уран-236 – 0.66%, продукти на делене – 5.50%, плутоний (от който около 2/3 са деящи се изотопи) – 1.05%, минорни актиниди – 0.12% и уран-238 – 91.96% (Kessler, 2011). Както се вижда, в отработеното гориво има значителни количества деящ се материал, което се дължи на факта, че за да бъдат изразходени, ядреният реактор трябва да работи безкрайно дълго време. Голяма част от тези нуклиди може да бъде извлечена чрез радиохимична преработка и върната под различна форма в ядрения горивен цикъл. На това свойство на ядрените горива се основава концепцията за затворения ядрен горивен цикъл (Велев и Филипов, 2008).

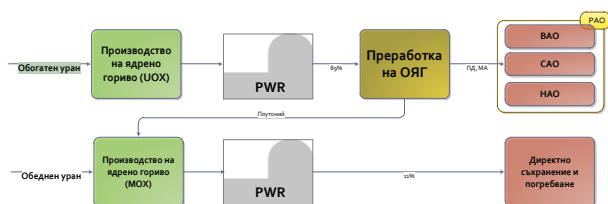
Смесено уран-плутониево оксидно гориво (MOX)

Първоначално, смесените уран-плутониеви оксидни горива (MOX горива) са разработвани като метод за утилизирание на непрекъснато нарастващите количества плутоний, получени от военни и цивилни източници. Структурата на смесените оксидни горива може да представлява двуфазна смес от UO_2 и PuO_2 и/или еднофазен твърд разтвор – $(\text{U,Pu})\text{O}_2$. Тегловният дял на PuO_2 може да се изменя в широки граници – от 1.5% до 30%, в зависимост от типа на реактора, за който е предназначено горивото (Burakov et al., 2011). Уран-плутониевото гориво позволява бързо връщане на плутония от отработеното гориво в горивния цикъл, използвайки го в

леководни реактори или реактори на бързи нейтрони (Crossland, 2012).

Едно от най-големите предимства на оксидните горива е свързано с възможността за по-лесното увеличаване на концентрацията на делящия се материал, в сравнение с обогатяването на урановите горива, тъй като делящите се изотопи представляват около 2/3 от плутониевата смес. По-голямото количество на делящите се изотопи от своя страна позволява достигането на по-голяма дълбочина на изгаряне и съответно по-пълно изгаряне на ядреното гориво. Прилагането на затворени ядрени горивни цикли и рециклирането на плутониевите изотопи под формата на смесени оксидни горива има решаващо значение в още няколко основни насоки – разширяване на ресурсната база на ядрената енергетика и намаляване на зависимостта от природния ресурс, подобряване на устойчивостта на неразпространение на ядрени материали и значително намаляване на обемите на складираните плутоний и обеднен уран (Филипов и Найденов, 2015).

Опростена схема на горивен цикъл с рециклиране на плутония в леководни реактори под формата на MOX е показана на фиг. 1.



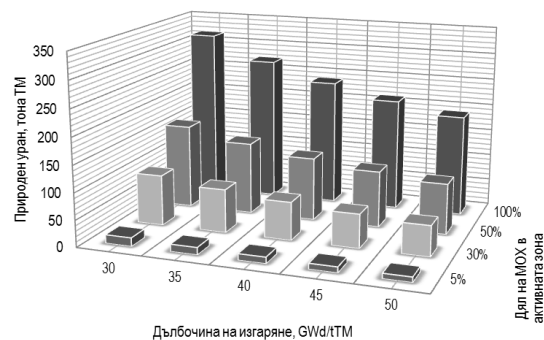
Фиг. 1. Схема на горивен цикъл с рециклиране на плутония под формата на MOX гориво в леководен реактор (LWR) (OECD, 2006)

Реализирани спестявания при използването на MOX

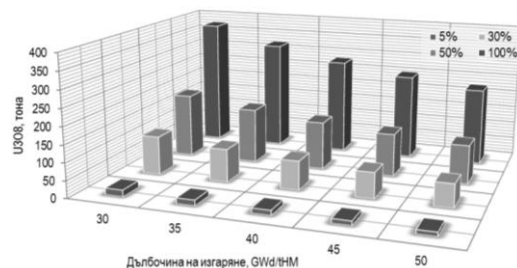
За анализ на материалните спестявания, реализирани от използването на смесено уран-плутониево гориво е разгледан референтен реактор с вода под налягане (PWR) с брутна електрическа мощност 1000 MW, коефициент на използване на инсталираната мощност 0.85 и брутен термодинамичен к.п.д. на енергийния блок от 32.6%. Разгледани са материалните потоци при използване на ураново и уран-плутониево гориво и са пресметнати материалните спестявания при различни дълбочини на изгаряне и различен дял на MOX горивото в активната зона. Урановото гориво е с обогатяване по уран-235 от 4.4%, дялът на плутония в MOX горивото е 7.23%, а останалата част е обеднен уран с концентрация на уран-235 от 0.3%. Пресмятанията са извършени със софтуер за анализ на материалния баланс на горивните цикли VISTA, разработен от МААЕ (IAEA, 2007)

Резултатите, показващи реализираните спестявания от използване на MOX гориво в сравнение с използване на ураново гориво в зависимост от достигнатата дълбочина на изгаряне и количеството уран-плутониево гориво, заредено в активната зона, са показани на фиг. 2 – фиг. 4. На фиг. 5 са показани количествата произведен обеднен уран в резултат на намалената необходимост от обогатен

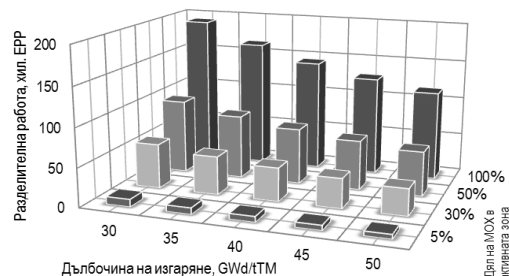
уран. В тези количества не е включен обедненият уран, използван при производството на уран-плутониевото гориво.



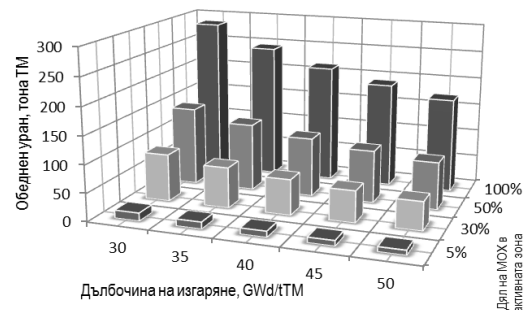
Фиг. 2. Реализирани годишни спестявания на природен уран



Фиг. 3. Реализирани годишни спестявания на уранов концентрат



Фиг. 4. Реализирани годишни спестявания на разделителна работа



Фиг. 5. Маса на произведения годишно обеднен уран в резултат на намаляването на нуждата от обогатен уран

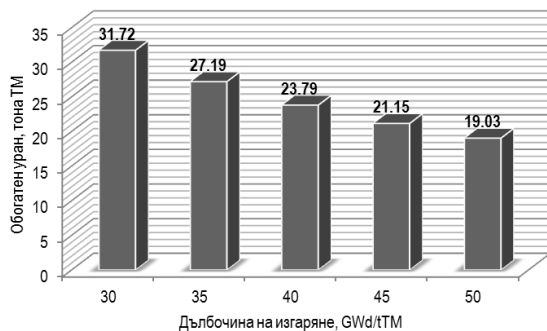
От резултатите, показани на фигури 2 – 4 се вижда ясна тенденция на увеличаване на спестяванията на уранов концентрат, природен уран и разделителна работа. Използването на смесено оксидно гориво както при реактори, при които е възможно зареждане на активната зона с MOX до 1/3, така и при по-съвременни реактори, които позволяват работа със 100% зареждане с уран-плутониево гориво, позволява реализирането на

значителни икономии на първичен ресурс под формата на концентрат и природен уран, както и намалява нуждите от разделителна работа, съответно намалява нуждата от инсталирана мощност на заводите за изотопно разделяне.

Допълнителен положителен ефект от използването на уран-плутониеви горива е възможността да се утилизират по-пълно делящите се материали, налични в отработеното ядрено гориво, както и да се оползотвори обедненият уран, явяващ се отпаден продукт от процеса на изотопно обогатяване, който понастоящем преимуществено се складира и намира ограничено приложение.

Влияние на дълбочината на изгаряне върху необходимостта от първичен ресурс

От фиг. 2 – 4 става видно, че с увеличаването на дяла на MOX горивото в активната зона за увеличават и материалните спестявания в предния край на ядрения горивен цикъл. Друга отчетлива тенденция е намаляването на абсолютните спестявания с увеличаването на дълбочината на изгаряне. Имайки предвид, че при 100% зареждане на активната зона с уран-плутониево гориво, което се произвежда от обеднен уран и плутоний, изведен от отработеното ядрено гориво, спестяванията на първичен ресурс са 100%, то е необходимо да се изследва влиянието на дълбочината на изгаряне върху необходимостта от първоначален ресурс.



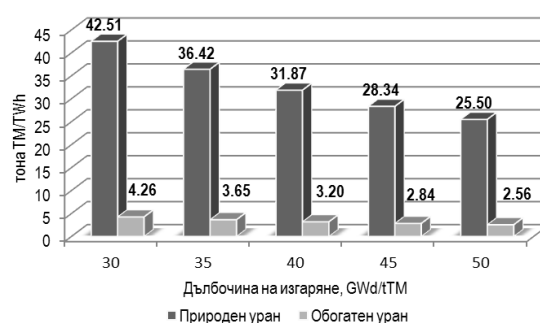
Фиг. 6. Годишна необходимост от уран с работно обогатяване (G_x) в зависимост от дълбочината на изгаряне

Съгласно уравнение (1) може да се определи годишната необходимост от тежък метал за производство на определено количество електроенергия при зададена дълбочина на изгаряне. Зависимостта е валидна както за ураново, така и за уран-плутониево гориво. На фиг. 6 са показани количествата уран с работно обогатяване за достигане на съответните дълбочини на изгаряне от 30 до 50 GWd/tTM за реактор с вода под налягане с електрическа мощност 1000 MW, коефициент на използване на инсталираната мощност 0.85 и брутен термодинамичен к.п.д. на енергийния блок от 32.6%. Очевидна е намаляващата тенденция, която показва очаквания факт, че с увеличаване на енергопроизводството от единица маса метал, необходимите количества намаляват. Повишаването на ефективността на използването на първичен ресурс обяснява и намаляването на ресурсните спестявания в

номинални стойности с увеличаването на дълбочината на изгаряне.

За да бъдат оценени по-пълно спестяванията на природен и обогатен уран, произтичащи от увеличаването на дълбочината на изгаряне, е удобно да се използва специфичният разход за произведен тераватчас електроенергия. На фиг. 7 е илюстрирано намаляването на специфичния разход на природен и обогатен уран с увеличаването на дълбочината на изгаряне. Това спомага и за намаляването на нужните количества уранов концентрат и уранова руда, както и необходимата разделителна работа.

Намаляването на необходимостта от природен уран (при ураново гориво) и от обогатен уран или уран-плутониево гориво е правопрпорционално на увеличението на дълбочината на изгаряне, при еднакво електропроизводство (фиг. 7).



Фиг. 7. Необходимо годишно количество природен и обогатен уран за производството на 1 TWh електроенергия

Реализирани спестявания при анализ на реален горивен цикъл

Извършените дотук пресмятания ясно показват ползата от рециклирането на делящите се нуклиди от отработеното ядрено гориво. Те, обаче, са извършени за референтен реактор и са проведени със средство, което оценява материалните спестявания без да определя действителните количества плутоний, които могат да бъдат произведени и рециклирани за година от реален енергиен реактор.

За целта е необходимо да бъде изследвано изгарянето на ураново гориво, да бъде определен изотопният състав на плутония след отлежаването му и да бъде пресметнато допълнителното енергопроизводство от върнатите в цикъла обеднен уран и плутоний.

За провеждане на анализа е използван софтуерният продукт SCALE6.1, разработен от лабораториите „Оук Ридж“, САЩ, чието предназначение е да пресмята изменението на изотопния състав на ядреното гориво при изгаряне и отлежаване (ORNL, 2011). Разгледан е действителен затворен горивен цикъл на енергиен реактор с вода под налягане, който може да използва както ураново, така и уран-плутониево гориво.

За целта е избрано ядрено гориво на „Уестингхауз“ W17x17, с начално обогатяване 4.8% и проектна дълбочина на изгаряне 62 000 MWd/tTM (Westinghouse, 2008), което е типичен представител на най-съвременните ядрени горива. Параметрите на реактора са електрическа мощност 1000 MW, коефициент на използване на инсталираната мощност 0.85 и брутен термодинамичен к.п.д. на енергийния блок от 32.6%. В този случай, при използване на ураново гориво, нужното годишно зареждане с обогатен уран е 15.35 tTM, а необходимият природен уран за производството е 168.06 tTM. Полученият в резултат на обогатяването обеднен уран е 152.71 tTM.

Таблица 1.

Изотопен състав на плутония, извлечен от урановото ОЯГ след 10-годишно отлежаване и използван за изготвянето на MOX

Изотоп	Дял	Концентрация в ОЯГ
	w%	g/tTM
Pu-238	3.07	392.7
Pu-239	52.54	6 717.0
Pu-240	25.24	3 226.0
Pu-241	9.81	1 254.0
Pu-242	9.34	1 194.0

В резултат на работата на реактора, в отработеното гориво има известно количество плутоний, което може да бъде рециклирано съгласно схемата, показана на фиг. 1. Поради високата си активност, отработеното гориво отлежава няколко години преди да бъде преработено и плутоният да бъде извлечен. Изотопният състав на получения плутоний и концентрациите на различните изотопи след 10 години отлежаване са пресметнати със софтуерния пакет SCALE6.1 и са представени в таблица 1.

Във втория етап на горивния цикъл – използването на MOX, е използван плутоний със състава, показан в таблица 1, като масовият му дял в свежото уран-плутониево гориво е 7.23%, а останалата част е обеднен уран с концентрация на уран-235 0.3%. Постигната е дълбочина на изгаряне, идентична с тази на горивото W17x17 – 62 000 MWd/tTM, при същите експлоатационни характеристики на реактора. В резултат, необходимото начално количество тежък метал отново е 15.35 tTM, но в случая не е необходим нито природен уран, нито се произвежда обеднен уран. В случая са консумирани 1.11 tTM плутоний и 14.24 tTM обеднен уран.

От тези 1.11 tTM плутоний, 0.69 tTM са дялящи се изотопи. За сравнение, за постигане на същата дълбочина на изгаряне с гориво с обогатяване по уран-235 4.8%, годишно са необходими 0.74 tTM дялящи се изотопи.

В резултат на по-високата ефективност на уран-плутониевото гориво и на повторното използване на материали, получени от първоначалния природен уран – обеднен уран и възпроизведен плутоний се повишава и използваемостта на природния ресурс. При отворен горивен цикъл с гориво W17x17 за производството на 1

TWh електроенергия са необходими 22.57 tTM природен уран като при неговото производство се получават 20.51 tTM обеднен уран.

За производството на 15.35 tTM MOX с концентрация на плутоний 7.23% са нужни 1.11 tTM плутоний и 14.24 tTM обеднен уран, от които се генерират 7.446 TWh електроенергия. От тези данни се установява, че за производството на 1 TWh са необходими 148.94 kgTM плутоний и 1.911 tTM обеднен уран.

От 1 tTM първоначално заредено ураново гориво се получават 12.784 kgTM плутоний. При обогатяване по уран-235 на свежото гориво от 4.8%, за получаването на 1 tTM обогатен уран са необходими 10.95 tTM природен уран, при което се генерират 9.95 tTM обеднен уран. Това означава, че от 1 tTM природен уран се получават 1.167 kgTM плутоний и 0.909 tTM обеднен уран, при така разглежданата схема на изгаряне. При отворен горивен цикъл за производството на 1 TWh електроенергия са нужни 22.57 tTM природен уран, от които могат да се генерират 26,34 kgTM плутоний, които да допроизведат още 0.18 TWh електроенергия при рециклиране, което е повишаване на използваемостта на първоначалния ресурс с 18%.

Заклучение

Връщането на плутония в горивния цикъл води до значителни икономии на първоначален ресурс (природен уран) – между 5 и 100% от нужния за производството на обогатен уран за едно зареждане, в зависимост от дяла на MOX горивото в активната зона. В допълнение, чрез използването на съвременни ядрени горива и еднократно рециклиране на плутония, получен от отработено ураново гориво, може да се постигне повишаване на използваемостта на първичния ресурс с до 1/5. Възможността за увеличаване на дълбочината на изгаряне също води право пропорционално до допълнителни спестявания.

Допълнителни ефекти от затварянето на цикъла са оползотворяването на големи количества обеднен уран и намаляване на необходимостта от изотопно обогатяване.

Литература

- Burakov, B. E., M. Ojovan, W. E. Lee. *Crystalline Materials for Actinide Immobilisation*. Imperial College Press, London, 2011. – 57-58 p.
- IAEA. *Nuclear Fuel Cycle Simulation System (VISTA)*. IAEA-TECDOC-1535, Vienna, 2007
- Kessler, G. *Proliferation-Proof Uranium/Plutonium Fuel Cycles. Safeguards and Non-Proliferation*. KIT Scientific Publishing, Karlsruhe, 2011 – 104 p.
- Nuclear Fuel Cycle Science and Engineering*. (Ed. Crossland, I.). Woodhead Publishing Limited, Oxford – Cambridge – Philadelphia – New Delhi, 2012. - 459 p.
- OECD NEA. *Advanced Nuclear Fuel Cycles and Radioactive Waste Management*. NEA No. 5990, OECD, Paris, 2006. – 24 p.

ORNL. *Scale: A Comprehensive Modeling and Simulation Suite for Nuclear Safety Analysis and Design*. ORNL/TM-2005/39, Version 6.1, 2011

Westinghouse Electric Company. *17x17 Next Generation Fuel (17x17 NGF) Reference Core Report*. WCAP-16498-NP, Monroeville, PA, 2008. – 4 p.

Велев, В., К. Филипов. *Ядрени горива*. С., ИФО Дизайн, 2008. – 55, 56, 78, 86 с.

Синёв, Н. М. *Экономика ядерной энергетики: Основы технологии и экономики производства ядерного*

топлива. Экономика АЭС. М., Энергоатомиздат, 1987. – 82, 83, 106, 108, 129 с.

Филипов, К., И. Найденов. Влияние на типа на ядрения горивен цикъл върху активния състав на отработените горива. – В: *Сборник „Енергиен форум 2015“*, част 1, 2015. – 62-68

Статията е препоръчана за публикуване от Редакционен съвет.